REMARKS

Claims 18-26, 28-30, 32-51, 53-55, and 57-62 are pending. Independent Claims 18 and 41 have been amended to further describe the functional properties of the claimed tubes. A minor editorial change has been made to Claim 45. Support for this amendment is found in the specification on page 15, lines 6-*et seq.*, on page 18 and in the drawings. Accordingly, the Applicants do not believe that any new matter has been added. Favorable consideration is now respectfully requested.

The Applicants thank Examiner Bruenjes for the courteous and helpful discussion of August 19, 2004. The lack of any disclosure of a tube in Kodama was discussed. The examiner pointed out that section [0026] of Kodama described medical devices and food containers that might be made from the multilayer laminate of Kodama. The examiner pointed out that the secondary reference, Hotta, disclosed plastic tubes. The Applicants urged that neither reference disclosed or suggested multilaminate tubes, especially tubes having the superior flexibility and non-stick properties required by the present claims. The examiner indicated that little or no weight had been given to the functional limitations in the independent claims, because these were deemed to be inherent characteristics of the multilayer laminate of Kodama.

Rejection--35 U.S.C. § 103(a)

Claims 18-26, 28-30,32-51,53-55, and 57-62 were rejected under 35 U.S.C. § 103(a) as being unpatentable over Kodama et al. (JP 09-254339), in view of Hotta, U.S. Patent No. 4,588,777. The cited prior art does render the invention obvious for multiple reasons. Neither document discloses or suggests a multilaminate tube, especially, a multilaminate tube having the superior flexibility and superior "non-stick" properties characterized by a sheer-peel and 180° peel strength values required by Claims 18 and 41.

The Official Action indicates that Kodama, abstract and page 10, paragraph 12, disclose a laminate for forming a tube or medical product. The Applicants disagree, because there is no disclosure at all in Kodama of a tube formed from a multilayer laminate such as that of Claim 18, much less the three layer tube of Claim 41. Kodama et al. teaches only a thin "film", such as wrapping or packaging film, not a tube. However, the invention is directed to a "tube", such as medical tube. The "film" of Kodama et al. and a "tube" of the present invention are two completely different articles and, from the technical point of view, a strict distinction should be made between them. Moreover, since there is no disclosure of a tube, there cannot be any reasonable expectation of success in obtaining a tube with the superior flexibility and non-stick properties of the present invention.

As discussed, the last page of Kodama [0026] describes a multilayer laminate superior in transparency, flexibility, etc. The English translation of this section is not clear, however, it appears to describe potential uses for the multilayer laminate of Kodama, such as for packaging films, book covers, medicine hygienic materials, stationary, or food containers. These products could all be considered flat sheet-like products. Even food containers, such as plastic wrappers, films used to seal "TV dinners" or pouches containing food are flat sheet like products. Moreover, this section of Kodama merely speculates about possible uses of the multilayer laminate. Kodama [0026] does not provide sufficient suggestion or motivation for making the tube of the present invention, nor provide any reasonable expectation of success in this disclosure for a multilaminate tube with the superior properties required for the multilaminate tube of independent Claims 18 and 41. Moreover, the Kodama plastic compositions differ from those of the present invention as will be addressed below in more detail.

Hotta also fails to disclose a multilaminate tube with the superior flexibility and non-stick properties required by the present invention. Hotta does disclose that tubes may be constructed from synthetic resin, see col. 6, line 8. However, there is no suggestion to construct a multilaminate tube, nor any reasonable expectation of success that a multilaminate tube would have the superior properties of the multilaminate tube of the present invention. Essentially all that Hotta teaches is that tubes can be made out of plastic! What is missing from the prior art is any suggestion to make a tube from the materials of Kodama, or any suggestion of how to make and use such a tube. Even if there were some hint in the prior art to make tubes from the multilayer laminate of Kodama, there is no reasonable expectation of success that such a tube would have the properties required of the tube of the present invention.

The examiner indicated that little or no weight had been given to the functional properties of the claimed tubes, because these properties were deemed to be inherent to any product made from the multilayer laminate of Kodama. The Applicants note that a functional limitation must be evaluated and considered, just like any other limitation of the claim for what it fairly conveys to a person of ordinary skill in the art, see MPEP 2173.05(h). Moreover, for a reference to serve as an anticipation when it is silent about the asserted inherent characteristic, such a gap in the reference may be filled with recourse to extrinsic evidence. Such evidence must make clear that the missing descriptive matter is necessarily present in the thing described in the reference, see MPEP 2131.01 (III). The Applicants submit that no such showing has been made in the Official Action, that is, that the functional properties required by Claims 18 and 41 are necessarily present in tubing produced from the materials of Kodama.

Furthermore the Applicants submit that these functional properties are not inherent to the multilayer laminate of Kodama, because different plastics or combinations of plastics would confer different functional properties and Kodama discloses different plastic compositions and various ranges of plastic ingredients which differ from those of the present invention. The compositional differences of the Kodama materials are discussed further below (see Table 3 below). Therefore, even if there were a suggestion to make tubes from the Kodama multilayer laminate, Kodama provides no guidance for selecting the compositions or combinations of resins (a) and (b) required by Claims 18 and 41 for producing tubes having the required functional properties. Accordingly, for these reasons and for those set forth in more detail below, the Applicants respectfully request that this rejection be withdrawn.

1. Amended Claims 18 and 41

To further distinguish the claimed invention from the prior art, independent Claims 18 and 41 have been further revised to clarify certain technical features and differences, such as further describing the anti-kink property of the claimed tubes and their non-stick properties. In order to make the technical features of the present invention clearer over Kodama et al., the following language has been added to both Claims 18 and 41 (hereinafter referred to as "the claim"):

"wherein said resin (I) forming a thick substrate layer and resin (II) forming a connection layer thinner than the substrate layer, the connection layer being capable of connecting to another tube or article by hot melt bonding, solvent bonding or adhesive bonding,

wherein said tube can form an arc having a radius of 20 mm without kinking, thereby the tube showing good resistance against tube/tube sticking and tube/film sticking after high-pressure sterilization."

This amendment clarifies that in the tube of the present invention, the resin (I) forms a thick substrate layer and resin (II) forms a connection layer which is thinner compared with

the substrate layer, and the connection layer is capable of connecting to other tube or article such as injection-molded plastic article by hot melt bonding, solvent bonding or adhesive bonding. The tube of the invention has no kinking property and shows good resistance against tube/tube sticking and tube/film sticking after high-pressure steam sterilization. These specified characteristics of the medical tube of the present invention could not be suggested by Kodama et al., which is merely directed to film or sheet for wrapping (or by Hotta who mere teaches plastic tubes).

2. Technical features of the invention

A brief explanation about the technical feature of the present invention is given based on the amended claims before making comparison with Kodama et al. The two-layered or three-layered tube of the present invention is medical tube suitable for use in medical application, wherein resin (I) constitutes a thick substrate layer and resin (II) forms connection layer which is far thin compared with the substrate layer. The constitutions of these two-layered and three-layered tubes are clearly shown by the following figures (reproduced from the attached drawings of the present invention).

Fig.1a

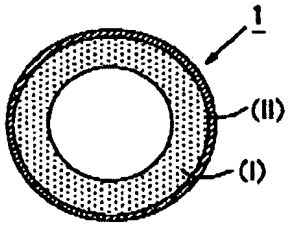


Fig.1b

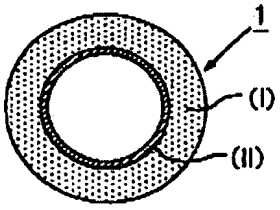
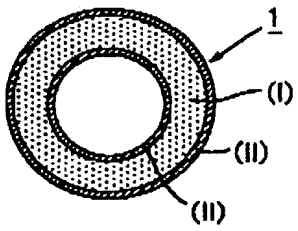


Fig.1c



In these figures, Fig. 1a shows the constitution wherein resin (I) forms a thick substrate layer which composes inner layer, and resin (II) forms a connection layer far thinner compared with the substrate layer, which composes the outer layer. Fig. 1b shows, on the

contrary, the case wherein resin (I) forms thick substrate layer which composes the outer layer, while resin (II) forms a thinner connection layer composes the inner layer. Fig. 1c shows the three-layered tube wherein resin (I) forms thick substrate layer composing intermediate layer, while resin (II) forming thinner connection layer comprises inner and outer layers.

The resin (I) which forms thick substrate layer as shown in the Figures, comprises:

(a) 5 to 40 mass% of polypropylene resin and

(b) 95 to 60 mass% of at least one selected from

i) a first hydrogenated block copolymer,

ii) a second hydrogenated block copolymer, and

iii) a third hydrogenated block copolymer.

While the resin (II) , which constitutes a very thin connection layer comprises:

(a') 45 to 100 mass% of polypropylene resin and

(b') 55 to 0 mass% of at least one selected from

i) a first hydrogenated block copolymer,

ii) a second hydrogenated block copolymer, and

iii) a third hydrogenated block copolymer.

As shown above, in the present invention, the hydrogenated copolymer (b) or (b'), which is used with the polypropylene resin (a) or (a') , is such polymer being characterized by consisting of only block copolymer at specified concentration and having no random copolymer. A tube containing hydrogenated random copolymer can not make a satisfactory good medical tube.

The medical tube of the present invention, being characterized by the constitution as described above, even after subjecting to high-pressure steam sterilization, shows no

stickiness (tackiness) on the surface, thereby preventing any thermal sticking of one tube to another and sticking of the tube to the surface of the sterilizing bag.

The tube of the present invention undergoes no tube-to-tube thermal sticking after high-pressure steam sterilization, with forceps clamping the tube, as is provided in the claim as: "said tube has (i)a tube/tube shear peal strength of less than 35N, as measured on a stuck or adhered portion of the outermost layer of one said tube against the outermost layer of another said tube after autoclave sterilization at 121°C for 20 minutes".

And the tube of the present invention also shows no tube-to-film thermal sticking after high-pressure steam sterilization, with the tube in touch with the surface of the innermost polypropylene layer of a sterilizing bag, as is provided in the claim as: "said tube has (ii)a tube/film 180° peel strength of less than 10N, as measured on a stuck or adhered portion of the outermost layer of said tube and an innermost polypropylene layer of a sterilization bag, by the test method defined in JIS K6854 after autoclave sterilization at 121°C for 20 minutes"

The tube of the present invention also shows excellent high anti-kinking property as is provided in the claim as: "wherein said tube can form an arc having a radius of 20 mm without kinking", so that the tube is free from serious problem associated with infusion, in which the tube undergoes easy bent and blocks the flow of blood or infusion fluid in the medical tube.

The medical tube of the present invention, having a connection layer composed of resin (II) which is far thinner than the substrate layer of the resin (I), is capable of connecting to other tube with different diameter or injection-molded article by hot-melt bonding, solvent bonding or adhesive bonding, thereby forms suitable medical devices such as a blood circuit and infusion circuit as is provided in the claim as: "the connection layer being capable of

connecting to other tube or article by hot melt bonding, solvent bonding or adhesive bonding".

The detailed connection procedure of the tube is shown in Fig. 2 and Fig. 3 below of the present invention.

Fig.2

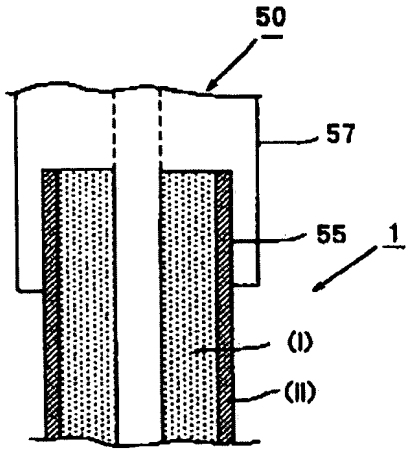
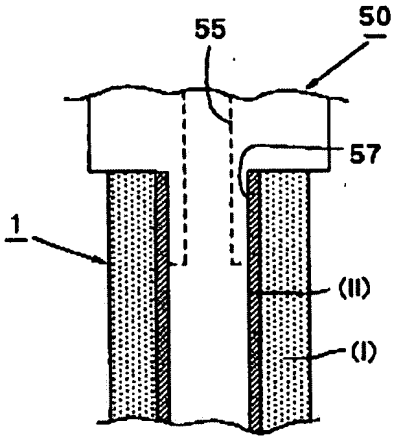


Fig.3



In Fig. 2, wherein the connection layer of the resin (II) forms the outer layer of the tube, it is shown how a connection to a tube 50 having different diameter, is made by utilizing the outer connection layer (II), by preferably hot melt bonding or solvent bonding. In Fig. 3, wherein the connection layer of the resin (II) forms the inner layer, it is demonstrated how a connection to a tube 50 with different diameter is made by utilizing the inner connection layer(II), by similarly hot melt bonding or solvent bonding.

3. Comparison of present invention with Kodama et al.

The present invention is directed to a tube that is hollow inside forming a channel through which a fluid may flow. A convenient English dictionary, LONGMAN Advanced AMERICAN DICTIONARY, gives the definition for a tube as: "Tube is a round pipe made of soft material especially for liquids or gases to go through."

More specifically, the present invention is directed to a multi-layered medical tube suitable for use in an extracorporeal circulation circuit such as a blood circuit for artificial kidney dialysis, a blood circuit for blood plasma exchange, a circuit for ascites treatment systems by filtration, concentration and infusion. The multi-layered tube of the present invention is also preferably used, in various medical devices such as a blood tube, an infusion tube, a catheter, and a balloon catheter, etc.

The tube for such medical apparatuses or devices must hold intact its tubular-shape and not be deformed or crashed easily (shape-sustainability) thereby securing said tube's inside channel so that blood or infusion fluid can flow through the channel smoothly. In order to have enough shape-sustainability, a tube should have some rigidity, which means that said tube is composed of thick flexible plastic material to give good tube-wall thickness. In the preferred embodiment of the present invention, the thickness of the tube is about 1.0 mm to 1.1 mm (1,000 μm-1.100μm) (see p21, lines 33-36, p29, lines 1-6, of the specification).

(2) Kodama et al is directed to a film

Meanwhile, Kodama et al. is basically directed to a film (a very thin film), or at most a sheet not a tube. Kodama et al. gives no description nor suggestion about a tube.

First of all, to give more objective basis for fair and unbiased analysis and judgment of Kodama et al., Applicants carried out a full text "search and replacement procedure" over Kodama et al. reference (Japanese Patent publication No. 1997-254339) for the words "film" and "sheet", using Microsoft Word's search and replacement software algorithm. (In the search and replacement procedure, each of the Japanese word "フィルム" (film) present in the Kodama text is automatically found out and replaced one by one with the corresponding English word "film".) The electronic file of Kodama et al. text, to be processed, was obtained by downloading from the data base file offered by Japanese Patent Office.

The result was attached as Exhibit-1 and summarized in Table 1 below.

Table 1 frequency of "film" and "tube" in Kodama et al. text

Number of appearance of the word "film" or "sheet"	54 times
Number of appearance of the word "tube"	0 time

As shown above, Kodama et al. in his specification directed to multi-layered laminate, referred to "film" or "sheet" as many s fifty four (54!) times, while with respect to "tube", completely no reference was made. This overwhelming fact is for Examiner's unfettered and unbiased consideration.

Kodama et al.'s fifty-four-time-referred-to-film (a very thin film), is substantially directed to a wrapping film for apparel materials, film for book cover, film for electronic circuit printing, wrapping film for stationery products, wrapping film for medical appliances (medical packaging film), medical disposable bag (medical abolition sack), medical and sanitary material (medical hygienic material), facial film, and surface protection film and the like (see paragraph [0026] of Kodama et al. publication.).

The Office Action appears to incorrectly refer to these medical packaging film, medical abolition sack or medical hygienic material (film), as "medical appliance."

In the medical field, by the term "medical appliance", it is meant such devices as extracorporeal circulation circuit such as a blood circuit for artificial kidney dialysis, a blood circuit for blond plasma exchange, a circuit for ascites treatment systems by filtration, concentration and infusion, a blood tube, an infusion tube, a catheter or a balloon catheter.

The medical packaging film of the Kodama et al. is only a wrapping film to pack these "medical appliances" (such as extracorporeal circulation circuit such as a blood circuit for artificial kidney dialysis, a blood circuit for blood plasma exchange, a circuit for ascites treatment systems by filtration, concentration and infusion, a blood tube, an infusion tube, a catheter or a balloon catheter.)

The film disclosed in Kodama et al. has the thickness of not less than 10 μm, preferably 20 μm, and in the preferred embodiment example, 40 μm thick multi-layered film is used (see paragraph [0012] and [0014] of Kodama et al. publication.).

Considering the thickness of the film (10 μm, 20μm. and at most 40 μm) to which Kodama et al. is directed to, it is undoubtedly to be used as a wrapping film or packaging film only, such as well known Saran Wrap™ wrapping film (its film thickness is widely known to be about 10-20μm). Such a thin film like Saran Wrap™ could not make a practical tube. Because the tube made of such thin film has no shape-sustainability and easily deforms or collapses under its own weight, therefore rendering its use for medical use such as blood fusion completely impossible.

The multi-layered tube of the present invention has a wall thickness of 1,000-1,100μm, about one hundred (100) times the thickness of Kodama et al.'s thin wrapping film (10-20μm). Accordingly, Kodama et al. does not describe and cannot suggest the tube of the present invention.

(3) Comparison

As described above, the tube of the present invention and film of the Kodama et al. are both directed to multi-layered body, but the basic shapes ("tube" versus "film") are completely different. The different structural characteristics of the prior art film and claimed tube provide different utilities and applications and, therefore, leading to different problems to be solved.

The medical tube of the present invention with form-sustainability, having a hollow channel formed inside, is suitable for use in medical appliance, and is assembled to make a blood circuit line, thereby supplied blood or fusion fluid to the line flows through the channel. While conventional medical tube, which is composed of flexible plastic material,

has a drawback wherein the tube tends to sometimes deform during handling, especially when being bent, causing kinks to form. Said kinking, when it occurs in a tube, can clog the channel, thereby blocking the smooth stream of blood or fusion fluid, rendering the tube inapplicable for medical applications.

It is to this point that the claim of the present invention provides as:

> "wherein said tube can form an arc having a radius of 20 mm without kinking".

As is shown in the working examples of the invention (see table 4 and 5 of the specification), the medical tube of the present invention has a very strong anti-kinking property of smallest radius of curvature of less than 20 mm, preferably about 11-13 mm, which means that with the tube of the present invention kinking is hard to occur compared with conventional medical tubes.

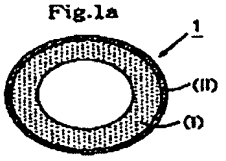
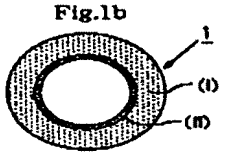
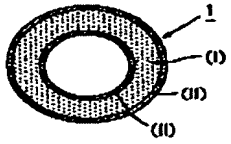
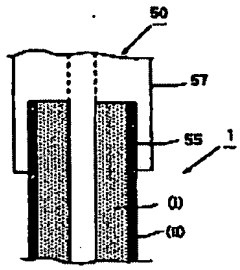
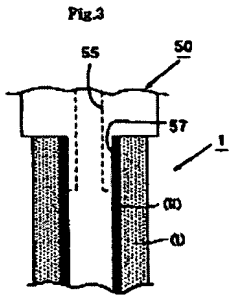
On the contrary, Kodama et al. is directed to a thin film, not a tube. The film is mainly used for wrapping or packing applications, not for flowing blood and the like. In addition, because the film of Kodama et al. is so thin, it cannot make any form-sustainable tube, as already discussed. In short, there is no occurrence of kinking problem to the wrapping or packaging film of Kodama et al., which forms a remarkable and striking contrast with the tube of the present invention.

As discussed above, the medical tube of the present invention is completely different from Kodama et al.'s wrapping or packaging film in required properties, safety standards, or applications.

(4) The fact that Kodama et al. is directed to film or sheet for wrapping (packaging) application and no description nor suggestion about a tube is provided in Kodama et al. reference, is also shown as below:

The shape or constitution of the medical tube of the present invention is clearly described with the following attached drawings:

Table 2 Figures given in the present Invention and Kodama et al.

This Invention " multi-layered tube "	Kodama et al laminate
Fig.1a  Fig.1b  Fig.1c  Fig.2  Fig.3 	No Figure or Drawing is given at all

With respect to the invention directed to multi-layered tube, because said tube being a three dimensional, article, it is essential to provide such drawings (Fig. 1a-Fig. 1c) as shown above in order to demonstrate the exact positioning of substrate layer and connection layer, when the former (or the latter) being the inner layer or the latter (or the former) the outer layer, and in order for a person skilled in the art to fully understand the technical meaning of the each layers positioning of the multi-layered tube of the present invention. And without Figures such as Fig. 2-Fig. 3 above, it would be impossible or very difficult to demonstrate how the connection of the multi-layered tube is made to other article such as a tube with different diameter using the connection layer (II) of the present invention.

Kodama et al. provides no figures or drawings. Because Kodama et al. is directed to film, and film being a two dimensional article, no drawing is necessary to describe it.

The fact that Kodama et al. discloses only "film", and no tube, is also shown clearly from the following descriptions of the applicants' specification and Kodama et al.'s reference:

In the multi-layered tube of the present invention, the thickness is about 1-1.0mm (1000-1100μm)and ratio of the thickness of substrate layer (I) to that of connection layer (II) is 940-980/60-20(=16/1-49/1), indicating that the substrate layer (I) should be thick enough compared with connection layer (II), or in other words, the connection layer (II) should be thin enough compared with substrate layer (I). Please refer to Fig. 1a-Fig. 1c, showing diagrammatically that thickness of substrate layer (I) is much larger than that of connection layer (II).

If the thickness ratio of layer (I) to layer (II) is not within said specified value, the tube comes to lose flexibility and especially, kinking phenomenon, which is critical for use in any medical application like blood transfusion, may occur. And also the tube can not be subjected to high-steam sterilization.

On the other hand, in Kodama et al. the film is a very thin 10-40 μm-thick-film and the ratio of substrate layer to surface layer is 1/1-8/1, preferably 2/1-6/1(Paragraph [0012]), indicating that the thickness of substrate layer to facial layer is too small that even if a tube is to be made using this film, the obtained tube has no shape-sustainability and readily deforms or collapses under its own weight. Moreover, such a tube would readily bend (kink) and could not be used as medical application. In the first place, such a thin-filmed-tube could never stand high pressure steam sterilization, rendering the tube useless as medical tube.

In addition to that, the tube having the ratio of substrate layer to surface layer is 1/1-8/1, preferably 2/1-6/1, would be unable to connect to other tube or injection molded article,

because surface layer of the tube is too thick compared with substrate layer, thereby rendering the tube meaningless as medical tube.

Kodama et al. provides no drawing such as Fig. 2-Fig. 3 of the present invention and completely silent on the connection layer (II) of the present invention, silent on the way in which said connection layer being capable of connecting to other tube or article by hot melt bonding, solvent bonding or adhesive bonding, even when connection layer being outer layer or inner layer.

Kodama et al., because it being directed to wrapping or packaging film, is completely silent on the specific features of the present invention, the features being:

"The medical tube of the present invention shows no kinking, and even after high-pressure steam sterilization, still having

(i) a tube/tube shear peel strength of less than 35N, as measured on a stuck or adhered portion of the outermost layer of one said tube against the outermost layer of another said tube after autoclave sterilization at 121°C for 20 minutes,

and having (ii) a tube/film 180° peel strength of less than 10 N, as measured on a stuck or adhered portion of the outermost layer of said tube and an innermost polypropylene layer of a sterilization bag, by the test method defined in JIS K6854 after autoclave sterilization at 121°C for 20 minutes, thereby showing good resistance to tube/tube sticking and tube/film sticking."

Kodama et al. discloses only "inflation method" or "T-die method" as a method or apparatus to make his multi-layered laminate (see paragraph [0012]). The fact that only "inflation" or "T-die" method is disclosed in Kodama et al. reference is demonstrated by conducting full text search and replacement procedure for the word "インフレーションネ"(inflation method) and "Tダイ"(T-die method). Please refer to attached Kodama et al. text (Exhibit-1) in

which replacement of Japanese word by English counterpart "inflation method" and "T-die method" is accomplished, and the result is summarized in Table 4 (page 18).

As widely known in the area of present invention, inflation or T-die method is used to make film or sheet, not for producing a tube. The fact that only "inflation method" or "T-die method" is provided to make multi-layered laminate, clearly shows Kodama et al. is directed only to film or sheet. Kodama et al. doesn't teach or suggest a method to make a tube.

(5) In Kodama et al.'s polymer composition, to make a good film laminate, random copolymer be used as a main and indispensable polymer, while block polymer is basically not preferable and should be as small as possible.

Kodama et al. discloses hydrogenated diene copolymer of conjugated diene and aromatic vinyl compound, wherein random copolymer being main and indispensable polymer.

In the polymer composition to make medical tube of the present invention, on the contrary, block copolymer is indispensable while random copolymer should be excluded (indispensability or essentiality of 100% block copolymer). This is the point where present invention is completely different from Kodama et al. The polymer compositions of the present invention and Kodama et al. are summarized in Table 3 and compared.

Table 3 Polymer compositions of present invention and Kodama et al.

	This invention	Kodama et al.
(I)	(a) 5-40 mass% of a polypropylene resin and (b) 95-60% of: (i) a first hydrogenated block copolymer (ii) a second hydrogenated block copolymer and (iii) a third hydrogenated block copolymer (no random copolymer allowed)	(A) 20-95% of a polypropylene resin and (B) 80-5% of: hydrogenated random copolymer of conjugated diene and aromatic vinyl compound (random copolymer is essential and should be more than 50%, preferably 85-94%)
(II)	(a) 45-100 mass% of a polypropylene resin and (b) 55-0% of: (i) a first hydrogenated block copolymer (ii) a second hydrogenated block copolymer and (iii) a third hydrogenated block copolymer (no random copolymer contained) (no random copolymer allowed)	(A) 50-100% of a polypropylene resin and (B) 50-0% of: hydrogenated random copolymer of conjugated diene and aromatic vinyl compound (random copolymer is essential and should be more than 50%, preferably 85-94%)

As discussed above, in the Kodama et al.'s hydrogenated diene copolymer of conjugated diene and aromatic vinyl compound, random copolymer is main and indispensable polymer (indispensability or essentiality of random copolymer).

The essentiality of random copolymer of Kodama et al. is shown by studying the table 3 of Kodama et al. reference (comparative example 4), wherein laminated sheet, which is composed of (A)(A') substrate layer containing 20% of block copolymer (random copolymer part 0%) and (B)(B') surface layer comprising block copolymer (random copolymer part 0%) of conjugated diene and aromatic vinyl compound, has poor transparency and flexibility, therefore could not be used as wrapping or packaging film for apparel material.

Thus, Kodama et al. clearly declares that for the wrapping or packaging application, the use of block copolymer (random copolymer content 0%) is not preferable and should be avoided. (On top of that, though in comparative example 4 of Kodama et al., block copolymer is used, its polypropylene composition is completely different from that of present invention.) Just to make sure, in the field of polymer chemistry, a "block copolymer" does

not contain any random copolymer part in the polymer molecule chain. This is true with the present invention that the block copolymer actually used in the present invention has zero random copolymer content.

It should also be recognized that Kodama et al. gives detailed explanations only about random-copolymer-essential hydrogenated diene polymer, with respect to its styrene content, butadiene and/or isoprene vinyl bond and content etc., but completely silent on (i) a first hydrogenated block copolymer, (ii)a second hydrogenated block copolymer and (iii) a third hydrogenated block copolymer of the present invention.

As discussed above, since the compositions of the polymer being completely different, Kodama et al.'s film made of hydrogenated diene polymer, which is random-copolymer-essential, could never have the same peeling strength that of the tube of the present invention made of (100%) block-copolymer-indispensable (with no random copolymer) hydrogenated copolymer.

Since the compositions of the polymers are completely different as summarized in Table 3, the Official Action is incorrect and groundless to suggest that Kodama et al. film may show, after steam sterilization, the (i) same tube/tube shear peel strength and (ii) tube/film 180° peel strength of the present invention as provided in the claim as

"(i) a tube/tube shear peel strength of less than 35N, as measured on a stuck or adhered portion of the outermost layer of one said tube against the outermost layer of another said tube after autoclave sterilization at 121°C for 20 minutes"

and "(ii) a tube/film 180° peel strength of less than 10 N, as measured on a stuck or adhered portion of the outermost layer of said tube and an innermost polypropylene layer of a sterilization bag, by the test method defined in JIS K6854 after autoclave sterilization at 121°C for 20 minutes."

Thus, the Applicants submit that the Official Action is incorrect and groundless, it is mere speculation.

II. Hotta

1. Hotta is directed to a single-layered tube not a multilayered tube

Hotta discloses polymer composition consisting of (a) 10-30% of polypropylene resin, (b) 40-80% of hydrogenated block copolymer comprising aromatic vinyl compound or conjugated diene and (c) 10-30% of ethylene-acrylate copolymer, said polymer composition is manufactured into sheets, blocks, nets or tubes(column 6, lines 3-17, column 12, Claim 1).

However, first of all, great attention should be given to the fact that Hotta's tube is single-layered tube (SLT), not a multi-layered tube (MLT) such as two-layered or three-layered tube, which the present invention is directed to.

SLT is a very primitive and nascent type of tube at the earliest stage of medical tube development history. As is clearly disclosed in the present specification as "background art", SLT such as Hotta's, even if how drastically the polymer compositions be changed, could never have all the performances of the present invention as:

"(a) The tube having proper flexibility without kinking upon bending, (b) the tube showing no stickiness (tackiness) on the surface and free from any change in form and dimensions after being sterilized with high-pressure steam, and (c) the tube permitting hot melt bonding or solvent bonding when connected to other tube having a different diameter or an injection-molded article."

Hotta is directed to SLT, a nascent type of tube having only one tube wall, hence in order to compensate the shortage or lack of layers, the existing one layer must have very complex polymer composition. This is the reason why Hotta's single layer essentially composed of (c) 10-30% of ethylene-acrylate copolymer in addition to (a) polypropylene

resin and (b) hydrogenated block copolymer comprising aromatic vinyl compound or conjugated diene. Hotta's SLT, therefore, owing to additional polymer composition of (c) 10-30% of ethylene-acrylate copolymer, is liable to undergo kinking, and during high pressure steam sterilization, the acrylate copolymer may subjected to hydrolysis to release acrylic acid thereby internal or outer surface of the tube becomes sticky or tacky and the SLT comes to adhered together or to the inner surface of sterilization bag. The ethylene-acrylate copolymer, being such an undesirable composition, is never used in the present invention.

Hotta is completely silent on the possibilities of composing two-or three-layered tube using said (a) polypropylene resin and (b) hydrogenated block copolymer comprising aromatic vinyl compound or conjugated diene, and avoiding (c) ethylene-acrylate copolymer. Hotta is still more silent on composing two layered tube, "wherein resin (I) forming a thick substrate layer and resin (II) forming a connection layer thin enough compared with the substrate layer, the connection layer being capable of connecting to other tube or article by hot melt bonding, solvent bonding or adhesive bonding" as is provided in the present claim.

As discussed above, such being the teachings or disclosures of Kodama et al.'s film and Hotta's SLT, it would be quite meaningless or would not make any sense trying to combine Kodama et al. and Hotta and thereby going to nowhere.

III. With respect to Kodama et al.

In conclusion, the disclosures of Kodama et al. are once again summarized as bellow:

(1) First of all, Kodama et al. is directed only to "film" or "sheet" as already shown in Table 1. No description or suggestion of a "tube" is found in the Kodama et al. publication.

Table 1 frequency of "film" and "tube" in Kodama et al. text

Number of appearance of the word "film" or "sheet"	54 times
Number of appearance of the word "tube"	0 time

(2) Kodama et al. discloses only "inflation method" and "T-die method" as a method or apparatus to make his multi-layered laminate as is shown in Table 4 (inflation or T-die method appears as many as eight (8) times, while any method to make tube never appears). As is well known to the skilled person, inflation or T-die method is exclusively used to make film or sheet, not for producing a tube. Inflation or T-die method is unable to produce any tube.

Table 4 frequency of "inflation method" and "T'-die method"

Number of appearance of the word "inflation" or "T-die" (method to make "film" or "sheet")	8 times
Number of any method to make "tube"	0 time

(3) As is shown in Table 5, Kodama et al.'s film or sheet is not the "medical appliance" per se, instead, said film or sheet is only a wrapping or packaging material (accessory) for "medical appliance".

Those film materials disclosed in Kodama et al., such as medical packaging film, should not be classified or called as "medical appliance", it's very confusing manner.

Table 5 Applications of Kodama et al. film

This invention: "medical appliance" such as "medical tube"	Applications of Kodama et al. film (paragraph [0006])
"Medical appliance" means such appliances or devices per se as: extracorporeal circulation circuit such as a blood circuit for artificial kidney dialysis, a blood circuit for blood plasma exchange, a circuit for ascites treatment systems by filtration, concentration and infusion, a medical tube such as a blood tube, an infusion tube, a catheter or a balloon catheter	Medical packaging film (wrapping film for medical appliance) Medical abolition sack (medical disposable bag) Medical hygienic material (film) (medical and sanitary material) (film)
Medical tube of the present invention is medical appliance per se	These are not called or categorized as "medical appliance". These are not "medical appliance" per se. These are at most accessory or supporting film material which are used to wrap or package the "medical appliance" (medical tube) of the present invention before use. These are also accessory film material which are used to wrap or package the used "medical tube" of the present invention ("used medical appliance") for disposing. These are also accessory film material which are used to wrap or package the "medical appliance" (medical tube) of the present invention as a dust cover or dust protective film.

(4) In table 6, comparison is also made and summarized with respect to the tube of the present invention and Kodama et al. film.

Table 6 Comparison of present invention tube with Kodama et al. film

Medical Tube of the present invention	Kodama et al. accessory film
Thickness: about 1-1.1 mm (1000-1100μm)	Thickness: 10-40 μm, too thin to make any tube
Resin (I) forming thick substrate layer, Resin (II) constituting far thin connection layer (I) capable of connecting to other article. Thickness ratio: 940-980/60-20(=16/1-49/1)	Only having substrate layer/surface layer. "Surface layer" forming no connection layer. Thickness ratio: 1/1-8/1(2/1-6/1) Substrate layer being too thin to form a tube. Surface layer being too thick to form a connection layer.
Constitutions of two-layered and three-layered tube are clearly shown in drawings. (Fig. 1a-1c)	No drawings given at all.
Connection layer(II) is capable of connecting to other tube or article by hot melt bonding or solvent bonding.	No description given at all.
Way of connections are shown in drawings when connection layer(II) constitutes inner layer or outer layer and detailed description given. (Fig. 2-3)	No drawing given at all. No description given at all.
Tube of the present invention suffers no kinking and having good anti-forceps.	No description given at all.
Tube of the present invention shows good resistance against tube/tube sticking and tube/film sticking after high pressure steam sterilization, also showing good anti-thermal sticking.	No description given at all.

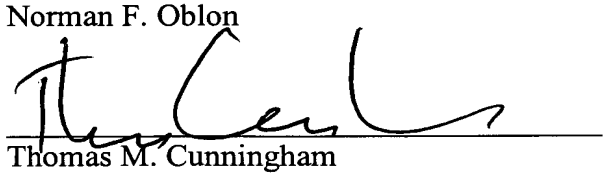
Accordingly, for all of the above reasons, the Applicants respectfully request that this rejection be reconsidered and withdrawn.

CONCLUSION

In view of the above amendments and remarks, the Applicants respectfully submit that this application is now in condition for allowance. Early notification to that effect is earnestly solicited.

Respectfully submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.
Norman F. Oblon



Thomas M. Cunningham
Attorney of Record
Registration No. 45,394

Customer Number
22850

Tel: (703) 413-3000
Fax: (703) 413 -2220
(OSMMN 06/04)

NFO:TMC\la

19)【発行国】日本国特許庁（ＪＰ）

EXHIBIT-1

(12)公開特許公報（Ａ）

(11)【公開番号】特開平９－２５４３３９
(43)【公開日】平成９年（１９９７）９月３０日

(51)【国際特許分類第６版】
B32B 27/32
25/16
// C08L 9/00 LBG
23/14 LCB
【ＦＩ】
B32B 27/32 E
25/16
C08L 9/00 LBG
23/14 LCB
【審査請求】未請求【請求項の数】１【出願形態】ＦＤ【全頁数】８

(21)【出願番号】特願平８－９１８５０
(22)【出願日】平成８年（１９９６）３月２２日

(71)【出願人】
【識別番号】０００００４１７８
【氏名又は名称】日本合成ゴム株式会社
【住所又は居所】東京都中央区築地２丁目１１番２４号
(72)【発明者】
【氏名】小玉 和寿
【住所又は居所】東京都中央区築地二丁目１１番２４号 日本合成ゴム株式会社内
(72)【発明者】
【氏名】藤巻 要
【住所又は居所】東京都中央区築地二丁目１１番２４号 日本合成ゴム株式会社内
(72)【発明者】
【氏名】神品 順二
【住所又は居所】東京都中央区築地二丁目１１番２４号 日本合成ゴム株式会社内
(74)【代理人】
【弁理士】
【氏名又は名称】福沢 俊明

(54)【発明の名称】多層積層体

表 1

水添ジエン系共重合体	ロ-1	ロ-2	ロ-3	ロ-4	ロ-5	ロ-6	ロ-7
水添前重合体の構造							
・共役ジエン化合物	BD(*1)	BD	BD	BD	BD	BD	BD
・芳香族ビニル化合物	ST(*1)	ST	ST	ST	ST	ST	ST
・ランダム共重合部分の含量（重量%）	92	94	85	94	94	92	0
・共役ジエン単位の1,2-結合と3,4-結合との合計の割合(*2)	82	79	78	75	20	78	−
・共役ジエン化合物／芳香族ビニル化合物の重量比	88／12	93／ 7	78／22	92／ 8	91／ 9	90／10	71／29
水素添加率（%）	99	99	97	97	95	30	99
数平均分子量（×10⁴）	31	39	28	4.5	25	76	−

(*1) BD：ブタジエン、ST：スチレン。
(*2) ランダム共重合部分における全共役ジエン単位に対する割合（%）。

(57)【要約】【課題】透明性、柔軟性、耐寒性、溶断シール強度、ヒートシール強度等に優れ、しかも透明性の経時変化の小さい多層積層体を提供する。【解決手段】多層積層体は、ポリプロピレン系樹脂（イ）および共役ジエン化合物と芳香族ビニル化合物とのランダム共重合部分を主体とする重合体を水素添加した水添ジエン系重合体（ロ）からなる樹脂組成物（ハ）から形成された基材層の少なくとも片面に、上記（イ）成分を主体とする樹脂組成物（ニ）から形成された表層を積層してなる。

【特許請求の範囲】
【請求項１】ポリプロピレン系樹脂（イ）９５～２０重量%および共役ジエン化合物と芳香族ビニル化合物とのランダム共重合部分を主体とする少なくとも１種の重合体の共役ジエン部分の二重結合が水素添加された水添ジエン系重合体（ロ）５～８０重量%からなる樹脂組成物（ハ）から形成された基材層の少なくとも一方の面に、ポリプロピレン系樹脂（イ）１００～５０重量%および少なくとも１種の水添ジエン系重合体（ロ）０～５０重量%からなる樹脂組成物（ニ）から形成された表層を積層してなる多層積層体。

【発明の詳細な説明】
【０００１】
【発明の属する技術分野】本発明はフィルム（film）およびシート（sheet）材料として好適な新規多層積層体に関し、更に詳しくは透明性、柔軟性、耐寒性、溶断シール強度、ヒートシール強度等に優れ、しかも透明性の経時変化の小さい多層積層体に関する。
【０００２】
【従来の技術】従来から、数多くの単層あるいは多層のフィルム（film）およびシート（sheet）材料が開発されており、このような材料のうち、透明性、柔軟性、風合い等に優れる代表的なフィルム（film）として、ビニロンフィルム（film）がある。しかし、ビニロンはその特性上、風合いが気温や湿度に影響を受けやすく、特に耐寒性が悪いため、冬季に気温の下がる地域や寒冷地での使用には限界がある。また、残留酢酸臭やブロッキングしやすいという問題のほか、また製膜法が溶液キャスト法に限られるためコストも高くならざるを得ないという欠点のある。これらの問題点を解決するために、ポリオレフィ

ン系の単層および多層のフィルム（film）材料が多数開発されている。これらのポリオレフィン系材料は、コストおよび耐寒性等の面で改善がみられるものの、透明性や柔軟性がビニロンフィルム（film）より劣る点が問題となっている。さらに近年、芳香族ビニル化合物系重合体ブロック、共役ジエン系化合物重合体ブロックもしくは芳香族ビニル化合物と共役ジエン系化合物とのランダム共重合体ブロック、芳香族ビニル化合物と共役ジエン系化合物からなり、芳香族ビニル化合物が漸増するテーパーブロックの２種以上のブロックより構成されるブロック共重合体を水素添加した水添ジエン系共重合体と、ポリオレフィン系樹脂とを主成分とする組成物からなるシート（sheet）・フィルム（film）に対して、ラミネート等の２次加工することが一般的に開示され（公開技報９４－１２８６４参照）、また、プロピレン・エチレンブロック共重合体を主体とするポリオレフィンに、芳香族ビニル化合物系重合体ブロックと水素添加された共役ジエン系化合物を主体とする重合体ブロックとからなる水添ブロック共重合体を少量配合したレトルト用ポリオレフィンフィルム（film）に対して、プロピレン共重合体を主成分とする樹脂を積層することにより、低温耐衝撃性、透明性、レトルト耐性および低温ヒートシール性のバランスに優れたフィルム（film）が得られることが開示されている（特開平７－１６６２０２４号公報参照）。しかし、これらのフィルム（film）およびシート（sheet）も、透明性、柔軟性、耐寒性、溶断シール強度およびヒートシール強度に加え、透明性の経時変化を総合した特性バランスの面では、未だ満足できるレベルにない。

【０００３】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上記従来技術の諸問題を背景になされたものであり、その課題は、透明性、柔軟性、耐寒性、溶断シール強度、ヒートシール強度等に優れ、しかも透明性の経時変化の小さい多層積層体を提供することにある。

【０００４】

【課題を解決するための手段】即ち、本発明は、ポリプロピレン系樹脂（イ）９５～２０重量%および共役ジエン化合物と芳香族ビニル化合物とのランダム共重合部分を主体とする少なくとも１種の重合体の共役ジエン部分の二重結合が水素添加された水添ジエン系重合体（ロ）５～８０重量%からなる樹脂組成物（ハ）から形成された基材層の少なくとも一方の面に、ポリプロピレン系樹脂（イ）１００～５０重量%および少なくとも１種の水添ジエン系重合体（ロ）０～５０重量%からなる樹脂組成物（ニ）から形成された表層を積層してなる多層積層体、を要旨とする。

【０００５】以下、本発明について詳細に説明する。樹脂組成物（ハ）および樹脂組成物（ニ）の（イ）成分として使用されるポリプロピレン系樹脂は公知のものであり、単独重合体であっても、プロピレンと他のモノマーとの共重合体であってもよいが、好ましくは共重合体である。前記共重合体における好ましい他のモノマーとしては、例えばエチレン；ブテン－１、ペンテン－１、ヘキセン－１、ヘプテン－１、オクテン－１等の直鎖状α－オレフィン；４－メチルペンテン－１、２－メチルプロペン－１、３－メチルペンテン－１、５－メチルヘキセン－１、４－メチルヘキセン－１、４，４－ジメチルペンテン－１等の分岐状α－オレフィン等が挙げられ、より好ましくはエチレン；ブテン－１、ペンテン－１、ヘキセン－１、ヘプテン－１、オクテン－１等の直鎖状α－オレフィンであり、特に好ましくは、エチレン、ブテン－１である。これらの他のモノマーは、単独でまたは２種以上を混合して使用することができる。本発明においては、前記共重合体からなるプロピレン系樹脂を使用することにより、透明性、柔軟性、耐寒性等の物性バランスに優れた多層積層体が得られ、就中プロピレンとエチレンおよび／またはブテン－１との共重合体を使用することにより、前記物性バランスに特に優れた多層積層体が得られる。前記共重合体における他のモノマーの共重合量は、通常、１５重量%以下、好ましくは１２重量%以下、より好ましくは２～１０重量%である。この場合、他のモノマーの共重合量が１５重量%より多いと、得られる多層積層体の透明性の経時的低下に対する改良効果が不十分となる場合がある。前記共重合体の構造については特に制限がなく、例えばランダム型、ブロック型、グラフト型、これらの混合型等いずれであってもよいが、好ましくはランダム型である。このようにランダム型共重合体からなるポリプロピレン系樹脂を使用することにより、透明性、柔軟性、耐寒性等の物性バランスに特に優れた多層積層体が得

られる。ポリプロピレン系樹脂のメルトフローレート（ＭＦＲ：２３０℃、２．１６ｋｇ荷重）は、フィルム（film）あるいはシート（sheet）として成形可能である限り特に制限はないが、好ましくは０．５～１５ｇ／１０分、さらに好ましくは１～１０ｇ／１０分とすることにより、成形性、透明性等に優れた多層積層体が得られる。本発明において、前記ポリプロピレン系樹脂は、単独でまたは２種以上を混合して使用することができる。樹脂組成物（ハ）中のポリプロピレン系樹脂の配合量は、９５～２０重量%、好ましくは９０～３０重量%、特に好ましくは９０～４０重量%である。この場合、ポリプロピレン系樹脂の配合量が９５重量%より多いと、フィルム（film）およびシート（sheet）の柔軟性および透明性が低下し、また２０重量%未満では、得られる多層積層体の強度および組成物の成形性が低下する。また、本発明の樹脂組成物（ニ）中のポリプロピレン系樹脂の配合量は、１００～５０重量%、好ましくは９５～８０重量%、特に好ましくは９５～８５重量%である。この場合、ポリプロピレン系樹脂の配合量が５０重量%未満では、フィルム（film）およびシート（sheet）の初期の透明性には優れるが、経時的な透明性の低下が大きくなる。

【０００６】次に、樹脂組成物（ハ）および樹脂組成物（ニ）の（ロ）成分として使用される水添ジエン系重合体は、共役ジエン化合物と芳香族ビニル化合物とのランダム共重合部分を主体とする重合体（以下、「水添前重合体」という。）を水素添加した少なくとも１種の重合体からなる。水添前重合体中のランダム共重合部分の含量は、好ましくは５０重量%以上、さらに好ましくは６０重量%以上、特に好ましくは７０重量%以上である。この場合、該ランダム共重合部分の含量が５０重量%未満では、得られる多層積層体の透明性、柔軟性、耐寒性等が低下する傾向がある。また、水添前重合体において、ランダム共重合部分中の共役ジエン単位の１，２－結合と３，４－結合との合計の割合は、全共役ジエン単位に対して、好ましくは６０%以上、さらに好ましくは６５%以上、特に好ましくは７０%以上である。この場合、前記１，２－結合と３，４－結合との合計の割合が６０%未満では、ポリプロピレン系樹脂（イ）とブレンドした場合の透明性および柔軟性に対する改良効果が低下する傾向がある。水添前重合体において、共役ジエン化合物としては、例えば１，３－ブタジエン、イソプレン、２，３－ジメチル－１，３－ブタジエン、１，３－ペンタジエン、２－メチル－１，３－ペンタジエン、１，３－ヘキサジエン、４，５－ジエチル－１，３－オクタジエン、３－ブチル－１，３－オクタジエン、クロロプレン等が挙げられるが、工業的に利用でき、また物性の優れた水添ジエン系重合体を得るには、１，３－ブタジエン、イソプレン、１，３－ペンタジエンが好ましく、特に好ましくは１，３－ブタジエン、イソプレンである。これらの共役ジエンは、単独でまたは２種以上を混合して使用することができる。また、芳香族ビニル化合物としては、例えばスチレン、α－メチルスチレン、ｐ－メチルスチレン、ｔ－ブチルスチレン、ジビニルベンゼン、Ｎ，Ｎ－ジメチル－ｐ－アミノエチルスチレン、Ｎ，Ｎ－ジエチル－ｐ－アミノエチルスチレン、ビニルピリジン等が挙げられ、好ましくはスチレン、α－メチルスチレンである。これらの芳香族ビニル化合物は、単独でまたは２種以上を混合して使用することができる。水添前重合体における共役ジエン化合物／芳香族ビニル化合物の重量比は、特に限定されるものではないが、好ましくは９５／５～４０／６０、さらに好ましくは９３／７～５０／５０である。

【０００７】水添前重合体は、共役ジエン化合物と芳香族ビニル化合物とのランダム共重合部分を主体とするものであるが、場合により、その重合体分子鎖中に下記のごとき重合体ブロックが含まれていてもよい。前記重合体ブロックとしては、例えば、芳香族ビニル化合物の単独重合体ブロック、１，４－結合を主体とするポリブタジエンブロック、共役ジエン化合物と芳香族ビニル化合物からなり芳香族ビニル化合物単位が漸増するテーパー状重合体ブロック等が挙げられる。これらの重合体ブロックが水添前重合体の分子鎖中に存在することにより、水添ジエン系重合体の物性上の特徴は若干低下するものの、ブロッキング性が低下することにより取扱い性が向上するため、工業的に有利となる場合がある。水添前重合体中の前記重合体ブロックの含量は、特に限定されないが、好ましくは５０重量%以下、さらに好ましくは４０重量%以下、特に好ましくは３０重量%以下である。この場合、重合体ブロックの含量が５０重量%を超えると、得られる多層積層体の透

明性、柔軟性、耐寒性等が低下する傾向がある。

【０００８】また、水添前重合体は、重合体分子鎖がカップリング剤残基を介して延長または分岐された構造を有することもできる。この場合に使用されるカップリング剤としては、例えばアジピン酸ジエチル、ジビニルベンゼン、ジメチルクロロシラン、四塩化ケイ素、ブチルトリクロロケイ素、ジメチルジクロロシラン、テトラクロロ錫、ブチルトリクロロ錫、テトラクロログルマニウム、１，２－ジブロムエタン、１，４－クロロメチルベンゼン、ビス（トリクロロシリル）エタン、エポキシ化アマニ油、トリレンジイソシアネート、１，２，４－ベンゼントリイソシアネート等が挙げられる。

【０００９】水添ジエン系重合体は、水添前重合体における共役ジエン部分の二重結合が水素添加されたものである。この水素添加に際して、水添前重合体は、単独でまたは２種以上を混合して使用することができる。水添ジエン系重合体における水素添加率は、好ましくは８０％以上、さらに好ましくは８５％以上、特に好ましくは９０％以上である。この場合、水素添加率が８０％未満であると、多層積層体の透明性、機械的強度、耐熱性、耐候性等が低下する傾向がある。水添ジエン系重合体のポリスチレン換算数平均分子量（以下、「数平均分子量」と略記する。）は、好ましくは５万～７０万、さらに好ましくは５万～６０万である。この場合、数平均分子量が５万未満では、水添ジエン系重合体をペレット化した場合ブロッキングしやすくなり、かつポリプロピレン系樹脂（イ）とブレンドした場合機械的強度が低下し、また７０万を超えると、流動性、加工性等が低下する。水添ジエン系重合体は、例えば特開平３－７２５１２号公報に開示されている方法によって製造することができる。

【００１０】さらに、樹脂組成物（ハ）および樹脂組成物（ニ）の（ロ）成分として使用される水添ジエン系重合体は、１種以上の官能基を導入した変性体であることもできる。前記官能基としては、例えばカルボキシル基、酸無水物基、水酸基、エポキシ基、アミノ基、アンモニウム塩基、ハロゲン原子含有基、スルホン酸基等や、これらの官能基から誘導される基、例えばエステル基等が挙げられる。このような官能基は、それらの種類に応じて、水添前重合体に対する水素添加の前または後に導入される。本発明において、前記水添ジエン系重合体は、単独でまたは２種以上を混合して使用することができる。

【００１１】本発明の基材層を形成する樹脂組成物（ハ）は、前記（イ）成分と（ロ）成分からなる。該樹脂組成物中の（ロ）成分の配合量は、５～８０重量%、好ましくは１０～７０重量%、特に好ましくは１０～６０重量%である。この場合、（ロ）成分の配合量が５重量%未満では、フィルム（film）およびシート（sheet）の柔軟性および透明性が低下し、また８０重量%より多いと、得られる多層積層体の強度および成形性が低下する。また、本発明の表層を形成する樹脂組成物（ニ）は、前記（イ）成分と場合により配合される（ロ）成分からなる。該樹脂組成物中の（ロ）成分の配合量は、５０重量%以下であればよく、好ましくは５～２０重量%、特に好ましくは５～１５重量%である。この場合、（ロ）成分の配合量が５０重量%を超えると、フィルム（film）およびシート（sheet）の初期透明性は良好であるが、経時的な透明性の低下が大きくなる。但し、本発明においては、樹脂組成物（ニ）中の（ロ）成分の配合量を、樹脂組成物（ハ）中の（ロ）成分の配合量と同等以下とすることが好ましい。本発明の多層積層体は、樹脂組成物（ハ）から形成される基材層の少なくとも一方の面に、樹脂組成物（ニ）から形成される表層を積層してなるものであり、かかる多層積層体においては、基材層と表層とが相互に補いあるいは相乗して、優れた特性を有する多層積層体が形成される。したがって本発明においては、樹脂組成物（ハ）および樹脂組成物（ニ）中の（イ）成分と（ロ）成分との組合せ、（ロ）成分の配合量等の諸条件は、多層積層体の所望の特性に応じて適宜選定される。本発明においては、本発明の特徴を本質的に損なわない範囲で、必要に応じてエチレン－プロピレン共重合体（ＥＰＭ）、エチレン－ブテン－１共重合体（ＥＢＭ）、エチレン－プロピレン－非共役ジエン共重合体（ＥＰＤＭ）、ポリブテン－１、ポリエチレン等のオレフィン系（共）重合体；アイオノマー、エチレン－酢酸ビニル共重合体（ＥＶＡ）、ポリビニルアルコール（ＰＶＡ）、エチレン－ビニルアルコール共重合体（ＥＶＯＨ）等の他の樹脂を、樹脂組成物（ハ）および／または樹脂組成物（ニ）中に配合することもできる。また、樹脂組成物（ハ）および／または樹脂組成物（ニ）には、本発明の特

徴を本質的に損なわない範囲で、必要に応じてブロッキング防止剤、帯電防止剤、滑剤のほか、有機系抗菌剤、無機系抗菌剤、酸化防止剤、防曇剤、着色剤、紫外線吸収剤等の公知の添加剤を配合することもできる。前記ブロッキング防止剤としては、例えばシリカ、ゼオライト等が好適であり、これらは天然、合成の何れでもよい。また前記帯電防止剤としては、炭素数１２～１８のアルキル基を有するＮ，Ｎ－ビス－（２－ヒドロキシエチル）－アルキルアミン類やグリセリン脂肪酸エステルが好ましい。さらに、前記滑剤としては、脂肪酸アミドが好ましく、具体的にはエルカ酸アミド、ベヘニン酸アミド、ステアリン酸アミド、オレイン酸アミド等が挙げられる。

【００１２】本発明の樹脂組成物（ハ）および樹脂組成物（ニ）における（イ）成分と（ロ）成分との混合は、例えばバンバリーミキサー、ロールミル、押出し成形機等の適宜の混合機を用いて行うことができるが、押出し成形機中で溶融混練することが好ましく、特に２軸押出し成形機を用いて溶融混練することが好ましい。このように２軸押出し成形機により溶融混練した樹脂組成物を使用することにより、フィルム（film）およびシート（sheet）中のフィッシュアイが少なくなり、外観に優れるばかりでなく、透明性がさらに優れたフィルム（film）およびシート（sheet）が得られる。なお、２軸押出し成形機を用いて溶融混練した樹脂組成物は、通常、ペレット化して使用される。本発明の多層積層体は、例えば(a)　基材層と表層とをインフレーション(inflation)法、Ｔダイ(T-die)法等の通常の方法でフィルム（film）あるいはシート（sheet）に成形したのち、熱貼合する方法、(b)　共押出しタイプのインフレーション(inflation)成形機やＴダイ(T-die)押出し成形機により直接積層成形する方法、（ｃ）例えば前記(a)の方法で予め成形した基材層あるいは表層の少なくとも一方の面に他方の層を押出しラミネートする方法等の公知の方法で積層して製造することができる。前記(a)および(b)の方法に使用されるＴダイ(T-die)押出し成形機のＴダイ(T-die)は、マルチマニホールドタイプまたはフィードブロックタイプの何れでもよい。これらの方法のうち、(b)の方法が好ましく、特に好ましい方法は、共押出しタイプのＴダイ(T-die)押出し成形機を用いる方法である。前記(b)　の方法では、基材層の一方の面に表層を積層する２層共押出し法、基材層の両方の面に表層を積層する３層共押出し法のほか、４層以上の多層押出し法を採用することができるが、耐ブロッキング性および透明性の経時変化の点から、少なくとも基材層の両方の面に表層を積層することが好ましい。また、本発明の多層積層体は、透明性が要求される用途には両鏡面として使用されるが、透明性がそれほど要求されない用途では、最外層の表層の少なくとも一方にマット、絞り、型押し等の意匠を施してもよい。本発明の多層積層体は、基材層の一方の面または両方の面に表層が積層されているが、基材層の両面に積層された各表層は同一でも異なってもよく、また基材層の一方の面または両方の面に、表層を２層以上積層することもできる。本発明の多層積層体は、場合により２つ以上貼合して使用することもできる。本発明の多層積層体の厚さは、多層積層体の所望の特性や用途に応じて適宜選択されるが、成形性および強度の観点から、１０μm以上であることが好ましく、さらに好ましくは２０μm以上である。また、本発明の多層積層体における基材層と表層との厚さの比率は、多層積層体の所望の特性や用途に応じて適宜選択されるが、基材層／表層＝１／１～８／１の範囲にあるのが好ましく、さらに好ましくは基材層／表層＝２／１～６／１の範囲である。

【００１３】

【発明の実施の形態】以下、実施例を挙げて本発明の実施の形態をさらに具体的に説明するが、本発明は、その要旨を超えない限り、これらの実施例に何ら制約されるものではない。実施例および比較例中の各種評価は、次のようにして行った。芳香族ビニル化合物の結合量（重量%）　赤外分析法による６７９cm-1のフェニル基の吸収により測定した。共役ジエン部分のビニル結合含量（%）　赤外分析法を用い、ハンプトン法により算出した。水素添加率（%）　溶媒として四塩化エチレンを用い、１００MHｚでの 1H—NMR スペクトルにより算出した。　水添ジエン系重合体の数平均分子量 溶媒としてトリクロルベンゼンを用い、１３５□におけるゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により、ポリスチレン換算して算出した。フィルム（film）強度 ＡＳＴＭ Ｄ ８８２に準拠して、フィルム（film）強度を測定し、以下の基準で判定した。フィルム（film）強度

が３００kgf/cm2 以上 ・・・ ○ フィルム（film）強度が３００kgf/cm2 未満 ・・・ × 透明性 ＡＳＴＭ Ｄ １００３に準拠して、成形直後のフィルム（film）ヘーズ（%）を測定し、以下の基準で判定した。〔厚さ４０μmフィルム（film）の場合〕ヘーズが２%以下 ・・・ o ヘーズが２%より高く３%以下 ・・・ □ ヘーズが３%より高い ・・・ × 〔厚さ１００μmフィルム（film）の場合〕ヘーズが３%以下 ・・・ o ヘーズが３%より高く４%以下 ・・・ □ ヘーズが４%より高い ・・・ × 柔軟性 ＡＳＴＭ Ｄ ８８２に準拠して、ヤング率（kg/mm2）を測定し、以下の基準で判定した。ヤング率が３０kg/mm2以下 ・・・ o ヤング率が３０kg/mm2より高く４０kg/mm2以下 ・・・ □ ヤング率が４０kg/mm2より高い ・・・ × 耐寒性 －１０□における触感により、以下の基準で判定した。常温の場合と同等に柔軟である ・・・ o 常温の場合に比べてやや硬い ・・・ □ 常温の場合に比べて非常に硬い ・・・ × 溶断シール強度 溶断シールを行ったのちシール部を引裂き、以下の基準で判定した。シール部は破壊せず非シール部が伸びる ・・・ o シール部は裂けるが抵抗があり非シール部も伸びる ・・・ □ 抵抗が無くシール部が裂ける ・・・ × 透明性の経時変化 ５０□の恒温槽中に１週間放置したのちのフィルム（film）ヘーズ（%）を、ＡＳＴＭＤ １００３に準拠して測定し、以下の基準で評価した。初期ヘーズとの差が０．５以下 ・・・ o 初期ヘーズとの差が０．５より大きく１．０以下 ・・・ □ 初期ヘーズとの差が１．０より大きい ・・・ × 実施例および比較例の配合処方に用いた各成分は、以下の通りである。（イ）成分（イ-1） ポリプロピレン（チッソ石油化学（株）製、商品名ＦＭ８３１Ｂ）（イ-2）ポリプロピレン（三菱化学（株）製、商品名ＦＸ４）（ロ）成分表１に示す水添ジエン系重合体（ロ-1） ～（ロ-6）を合成した。水添ジエン系重合体（ロ-7） は、シェル（株）社製水添スチレンーブタジエンースチレンブロック共重合体（ＳＥＢＳ）（商品名クレイトンＧ－１６５２）である。これらの水添ジエン系重合体のミクロ構造、数平均分子量および水素添加率を、表１にまとめて示す。

【００１４】

【実施例】実施例１（イ-1）成分８０重量部と（ロ-1）成分２０重量部とを、（株）池貝製２軸押出し成形機ＰＣＭ－４５を用いて溶融混練りしたのちペレット化し、樹脂組成物（ハ）を得た。また、同様にして（イ-1）成分９２．５重量部、（ロ-1）成分７．５重量部およびブロッキング防止剤としてシリカ０．２重量部を溶融混練したのちペレット化し、樹脂組成物（ニ）を得た。得られた各樹脂組成物を、フィードブロック付きＴダイ(T-die)を備えた３層フィルム（film）が成形可能な押出し成形機（モダンマシナリー社製、基材層用：６５mmφ、表層用：５０mmφ）に供給し、押出し温度２４０□、冷却ロール温度２０□として３層共押出しを行い、厚さ４０μm、各層の厚さの比率が１／４／１の３層積層体を得た。次いで、通常のエージングを行ったのち、各種評価を行った。その結果、得られた３層積層体は透明性、柔軟性、耐寒性、溶断シール強度およびフィルム（film）強度が優れ、また透明性の経時変化も極めて小さいものであった。評価結果を表２に示す。

【００１５】実施例２（イ-1）成分の代わりに（イ-2）成分を使用した以外は、実施例１と同様にして、各種評価を行った。その結果、得られた３層積層体は、透明性、柔軟性、耐寒性、溶断シール強度およびフィルム（film）強度が優れ、また透明性の経時変化も極めて小さいものであった。評価結果を表２に示す。

【００１６】実施例３および実施例４（ロ-1）成分の代わりに（ロ-2）成分または（ロ-3）成分を使用した以外は、実施例１と同様にして、各種評価を行った。その結果、得られた３層積層体は、透明性、柔軟性、耐寒性、溶断シール強度およびフィルム（film）強度が優れ、また透明性の経時変化も極めて小さいものであった。評価結果を表２に示す。

【００１７】実施例５実施例１と同様にして、（イ-1）成分４０重量部と（ロ-1）成分６０重量部からなる樹脂組成物（ハ）および（イ-1）成分８５重量部と（ロ-1）成分１５重量部およびブロッキング防止剤シリカ０．２重量部からなる樹脂組成物（ニ）を得た。次いで、厚さを１００μmとした以外は実施例１と同様にして、得られた各樹脂組成物から３層積層体を得たのち、各種評価を行った。その結果、得られた３層積層体は、透明性、柔軟性、耐寒性およびフィルム（film）強度が優れ、また透明性の経時変化も極めて小さいものであった。評価結果を表２に示す。

【００１８】実施例６実施例５と同様の樹脂組成物（ハ）および樹脂組成物（ニ）から、表層と基材層との厚さの比率が１／４の２層積層体を得た以外は、実施例１と同様にして、各種評価を行った。その結果、得られた２層積層体は、透明性、柔軟性、耐寒性およびフィルム（film）強度が優れたものであった。評価結果を表２に示す。
【００１９】比較例１～４（ロ-1）の代わりに（ロ-4）～（ロ-7）を使用した以外は、実施例１と同様にして、各種評価を行った。その結果、比較例１の３層積層体は、透明性に優れるものの、溶断シール強度およびフィルム（film）強度が劣り、透明性の経時変化も大きく、またブロッキングが激しく衣料材料包装フィルム（film）として使用できなかった。さらに比較例２～４の３層積層体は、不透明であった。評価結果を表３に示す。
【００２０】比較例５（イ-1）成分９８重量部と（ロ-1）成分２重量部から樹脂組成物（ハ）を得た以外は、実施例１と同様にして、各種評価を行った。その結果、得られた３層積層体は、透明性、柔軟性、溶断シール強度等が劣っていた。評価結果を表３に示す。
【００２１】比較例６（イ-1）成分１０重量部と（ロ-1）成分９０重量部から樹脂組成物（ハ）を得た以外は、実施例１と同様にして、各種評価を行った。その結果、得られた３層積層体は、フィルム（film）強度が劣っていた。評価結果を表３に示す。
【００２２】比較例７（イ-1）成分６０重量部、（ロ-1）成分４０重量部およびシリカ０．２重量部から樹脂組成物（ニ）を得た以外は、実施例１と同様にして、各種評価を行った。その結果、得られた３層積層体は、透明性の経時変化が大きかった。評価結果を表３に示す。
【００２３】
【表１】

表 1

水添ジエン系共重合体	ロ-1	ロ-2	ロ-3	ロ-4	ロ-5	ロ-6	ロ-7
水添前重合体の構造							
・共役ジエン化合物	BD(*1)	BD	BD	BD	BD	BD	BD
・芳香族ビニル化合物	ST(*1)	ST	ST	ST	ST	ST	ST
・ランダム共重合部分の含量（重量%）	92	94	85	94	94	92	0
・共役ジエン単位の1,2-結合と3,4-結合との合計の割合(*2)	82	79	78	75	20	78	−
・共役ジエン化合物／芳香族ビニル化合物の重量比	88／12	93／ 7	78／22	92／ 8	91／ 9	90／10	71／29
水素添加率（%）	99	99	97	97	95	30	99
数平均分子量（$\times 10^4$）	31	39	28	4.5	25	76	−

(*1) BD：ブタジエン、ST：スチレン。
(*2) ランダム共重合部分における全共役ジエン単位に対する割合（%）。

【００２４】
【表２】

表 2

	実施例					
	1	2	3	4	5	6
樹脂組成物（ハ）						
・（イ）成分（重量%）	イ-1 (80)	イ-2 (80)	イ-1 (80)	イ-1 (80)	イ-1 (40)	イ-1 (40)
・（ロ）成分（重量%）	ロ-1 (20)	ロ-1 (20)	ロ-2 (20)	ロ-3 (20)	ロ-1 (60)	ロ-1 (60)
樹脂組成物（ニ）						
・（イ）成分（重量%）	イ-1 (92.5)	イ-2 (92.5)	イ-1 (92.5)	イ-1 (92.5)	イ-1 (85)	イ-1 (85)
・（ロ）成分（重量%）	ロ-1 (7.5)	ロ-1 (7.5)	ロ-2 (7.5)	ロ-3 (7.5)	ロ-1 (15)	ロ-1 (15)
透明性	○	○	○	○	○	○
柔軟性	○	○	○	○	○	○
耐寒性	○	○	○	○	○	○
溶断シール強度	○	○	○	○	−	−
フィルム強度	○	○	○	○	○	○
透明性の経時変化	○	○	○	○	○	△

【００２５】
【表３】

表 3

	比較例						
	1	2	3	4	5	6	7
樹脂組成物（ハ）							
・（イ）成分（重量%）	イ-1 (80)	イ-2 (80)	イ-1 (80)	イ-1 (80)	イ-1 (98)	イ-1 (10)	イ-1 (80)
・（ロ）成分（重量%）	ロ-4 (20)	ロ-5 (20)	ロ-6 (20)	ロ-7 (20)	ロ-1 (2)	ロ-1 (90)	ロ-1 (20)
樹脂組成物（ニ）							
・（イ）成分（重量%）	イ-1 (92.5)	イ-2 (92.5)	イ-1 (92.5)	イ-1 (92.5)	イ-1 (92.5)	イ-1 (92.5)	イ-1 (60)
・（ロ）成分（重量%）	ロ-4 (7.5)	ロ-5 (7.5)	ロ-6 (7.5)	ロ-7 (7.5)	ロ-1 (7.5)	ロ-1 (7.5)	ロ-1 (40)
透明性	○	×	×	×	×	○	○
柔軟性	○	△	△	△	×	○	○
耐寒性	○	−	−	−	△	○	○
溶断シール強度	×	−	−	−	×	○	○
フィルム強度	×	○	○	○	○	×	○
透明性の経時変化	×	−	−	−	○	○	×

【００２６】
【発明の効果】本発明の多層積層体は、透明性、柔軟性、耐寒性、溶断シール強度、ヒートシール強度等に優れ、しかも透明性の経時変化が小さく、衣料材料包装用フィルム（film）、ブックカバー、電子回路成形用フィルム（film）、文具包装用フィルム（film）、医療用包装フィルム（film）、医療用廃棄袋、医療衛生材料、化粧フィルム（film）、表面保護フィルム（film）、文具、食品容器等の様々な分野に好適に用いることができる。